

*Item No. an PTo892.*

*[Signature]*

PAT-NO: JP410241860A

DOCUMENT-IDENTIFIER: **JP 10241860 A**

TITLE: MULTICOLOR LUMINESCENT DEVICE

PUBN-DATE: September 11, 1998

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

SAKAEDA, NOBORU

MATSUURA, MASAHIKE

KOTO, TAKEKI

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
IDEIMITSU KOSAN CO LTD	N/A

APPL-NO: JP09054149

APPL-DATE: February 21, 1997

INT-CL (IPC): H05B033/22, G02B005/20

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To offer a multi-color luminescent device that prevents the occurrence of color deviation (color mixture), and that is superior in visual recognition, besides be practical, that is of the constitution with good productivity of high yield.

SOLUTION: In a multi-color luminescent device where the color conversion member 2 where plural shading layer 21 and plural different color conversion layer 22 including one or more of fluorescent material layer are arranged alternately, repeatedly and separated planely on a transparent substrate 1, and the plural luminescent member 3 that are arranged separated planely to the position corresponding to the color conversion layer 22, are such arranged that the color conversion layer 22 receives the light from each luminescent member 3 and emit the different light, the unevenness of the surface on the side of luminescent member 3 of color conversion member 2 is flattened within 2.0&mu;m.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

DERWENT-ACC-NO: 1998-439739

DERWENT-WEEK: 200724

COPYRIGHT 2007 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Image display device - has colour changing array which  
has surface facing array of light emitters planarised to  
reduce surface roughness

INVENTOR: EIDA, M; KOFUJI, T ; MATSUURA, M ; MASAHIKE, M ; TAKEKI, K ; TOURN, E

PATENT-ASSIGNEE: IDEMITSU KOSAN CO LTD[IDEK]

PRIORITY-DATA: 1997JP-0054149 (February 21, 1997)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAIN-IPC
KR 519141 B1	March 9, 2006	N/A	000	H05B 033/00
EP 861016 A1	August 26, 1998	E	043	H05B 033/14
<u>JP 10241860 A</u>	September 11, 1998	N/A	025	H05B 033/22
CN 1198651 A	November 11, 1998	N/A	000	H05B 033/00
KR 98071546 A	October 26, 1998	N/A	000	H05B 033/00
US 6137459 A	October 24, 2000	N/A	000	G09G 003/30
TW 432893 A	May 1, 2001	N/A	000	G09G 003/30
JP 3224352 B2	October 29, 2001	N/A	024	H05B 033/12
EP 861016 B1	September 18, 2002	E	000	H05B 033/14
DE 69807958 E	October 24, 2002	N/A	000	H05B 033/14
CN 1105481 C	April 9, 2003	N/A	000	H05B 033/00

DESIGNATED-STATES: AL AT BE CH DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LT LU LV MC MK

NL

PT RO SE SI BE CH DE FR GB IT LI NL SE

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
KR 519141B1	N/A	1998KR-0005318	February 20, 1998
KR 519141B1	Previous Publ.	KR 9871546	N/A
EP 861016A1	N/A	1998EP-0102366	February 11, 1998
JP 10241860A	N/A	1997JP-0054149	February 21, 1997
CN 1198651A	N/A	1998CN-0106636	February 21, 1998
KR 98071546A	N/A	1998KR-0005318	February 20, 1998
US 6137459A	N/A	1998US-0021817	February 11, 1998
TW 432893A	N/A	1998TW-0101317	February 3, 1998
JP 3224352B2	N/A	1997JP-0054149	February 21, 1997
JP 3224352B2	Previous Publ.	JP 10241860	N/A
EP 861016B1	N/A	1998EP-0102366	February 11, 1998

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-241860

(43)公開日 平成10年(1998)9月11日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

H 05 B 33/22  
G 02 B 5/20

識別記号

101

F I

H 05 B 33/22  
G 02 B 5/20

101

審査請求 未請求 請求項の数9 FD (全25頁)

(21)出願番号 特願平9-54149

(22)出願日 平成9年(1997)2月21日

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 栄田 韶

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 松浦 正英

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72)発明者 小藤 武樹

千葉県市原市姉崎海岸24番地4

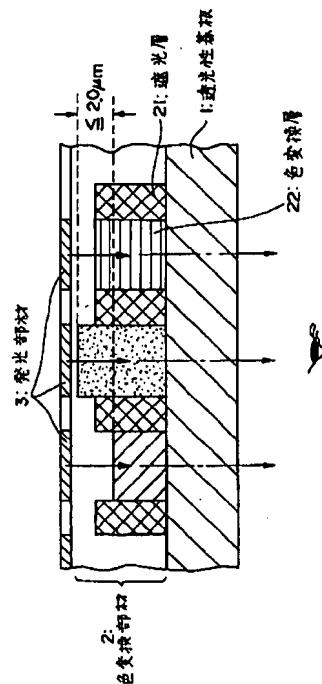
(74)代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54)【発明の名称】 多色発光装置

(57)【要約】

【課題】 色ずれ(混色)の発生を防止し、視認性に優れ、実用的であるとともに、歩留りよく製造できる構成の多色発光装置を提供する。

【解決手段】 透光性基板1上に複数の遮光層21と1以上の蛍光体層を含む複数の異なる色変換層22とが互い違いに繰り返し平面的に分離配置された色変換部材2と、色変換層22に対応した位置に平面的に分離配置された複数の発光部材3とが、各発光部材3の光を色変換層22が受光して異なる発光をするように配設された多色発光装置において、色変換部材2の発光部材3側の表面の凹凸が、 $2.0\mu m$ 以下に平坦化されてなることを特徴とする多色発光装置。



1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】透光性基板上に複数の遮光層と一以上の蛍光体層を含む複数の異なる色変換層とが互い違いに繰り返し平面的に分離配置された色変換部材と、色変換層に対応した位置に平面的に分離配置された複数の発光部材とが、各発光部材の光を色変換層が受光して異なる発光をするように配設された多色発光装置において、色変換部材の発光部材側の表面の凹凸が、 $2.0\mu m$ 以下に平坦化されてなることを特徴とする多色発光装置。

【請求項2】前記色変換部材と発光部材とが、それらの間に透光性媒体を挟んで配設されてなる請求項1記載の多色発光装置。

【請求項3】前記発光部材が、有機エレクトロルミネッセンス(EL)素子である請求項1または2記載の多色発光装置。

【請求項4】前記色変換層の膜厚が、 $10\mu m$ 以上である請求項1～3のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項5】前記色変換部材の発光部材側の表面が、研磨されてなる請求項1～4のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項6】前記色変換層の少なくとも一つが、透光性基板中または透光性媒体中に埋め込まれてなる請求項1～5のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項7】前記色変換層の少なくとも一つが、透光性媒体で底上げされてなる請求項1～6のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項8】前記色変換層の少なくとも一つが、透光性媒体を含むものである請求項1～7のいずれか1項記載の多色発光装置。

【請求項9】前記色変換層の少なくとも一つが、赤色に発光する蛍光体層である請求項1～8のいずれか1項記載の多色発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、多色発光装置に関する。さらに詳しくは、民生用、工業用の表示機器、カラーディスプレイ等に好適に用いられる多色発光装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】電子ディスプレイデバイスは、一般にmain-machine interfaceといわれるように、各種装置(machine)からの各種情報を視覚を通して人間(man)に伝達する電子デバイスであって、人間と装置とを結ぶ重要な橋渡し的役割(interface)を担っている。この電子デバイスには、発光形と受光形があり、発光形としては、例えばCRT(陰極線管)、PDP(プラズマディスプレイ)、ELD(エレクトロルミネッセンスディスプレイ)、VFD(蛍光表示管)、LED(発光ダイオード)などが挙げられる。一方、受光形としては、例えばLCD(液晶ディスプレイ)、E

2

CD(エレクトロケミカルディスプレイ)、EPID(電気泳動ディスプレイ)、SPD(分散粒子配向形ディスプレイ)、TBD(着色粒子回転形ディスプレイ)、PLZT(透明強誘電性PLZT[(Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub>]セラミックスディスプレイ)などが挙げられる。

【0003】ここで、電子ディスプレイデバイスのフルカラー化の方法としては、多色(例えば、赤、青、緑の三原色)の発光部分を平面的に分離配置して、それぞれ発光させる方法や、單一色の光を複数の異なる色変換層(例えばカラーフィルタまたは蛍光体)が受光して、分解または変換して異なる発光をさせる方法が挙げられる。

【0004】ここで、ELDは、自己発光のため、視認性が高く、また完全固体であるため、耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、現在無機や有機化合物を発光層に用いた様々なELDの開発が進められている。中でも有機ELD(または有機EL素子)は、有機化合物を二つの電極に挟んでなるディスプレイであり、有機化合物の種類が豊富で様々な色の光を高効率、高輝度で発するディスプレイとして期待が大きい。

【0005】しかしながら、現在有機EL素子の発光部分を平面的に分離配置して、異なる色の光を発光させて多色化するには、それぞれの色の発光材料を開発する必要があり、かつ、材料自体が有機化合物であるため、平面的に分離配置するプロセス(例えばフォトリソグラフィー法)に対する耐性が乏しいという問題があった。そこで、有機EL素子の単一色の光を色変換層にて分解または変換する方法が、発光層として单一色のみを設ければよく、簡便な点では優れていた。

【0006】なお、ここで色変換層としてカラーフィルタを用いる場合、その機能上、光を分解またはカットして取り出すので、光のロスは著しい。例えば、白色の発光を三原色(赤、緑、青)に分解する場合は、白色の輝度が高々3分の1に減少してしまう。一方、色変換層が蛍光体の場合には、光を吸収してより長波長(エネルギーの小さい)の蛍光に変換する機能を有しているが、例えば蛍光体の光の吸収率が80%として、80%の蛍光吸収率で蛍光を発するならば、64%の長波長の光に変換できることになる。実際そのような蛍光体は存在している。従って、色変換層としては、蛍光体層を含むものが、光の効率のよい利用の意味で好ましい。

【0007】そこで、例えば有機EL素子の単一色の光を蛍光体層を含む複数の異なる色変換層で多色化する構成としては、特開平3-152897号公報及び特開平5-258860号公報で開示されている。特に特開平5-258860号公報では、図11に示すように有機EL素子の発光が受光できるように蛍光媒体を配置した多色発光装置を開示している。

【0008】しかしながら、この多色発光装置について

は、遮光層が設けられていないため、有機EL素子から等方に発せられる光が絶縁性平坦化層（透光性媒体）を透過して、所望の蛍光媒体のみならず、隣接する蛍光媒体に入光し、色ずれ（混色）を生じさせる。

【0009】また、蛍光媒体上有機EL素子を積層する構成であるが、有機EL素子は、薄膜の有機層を二つの電極で挟んだ構成であるため、下地の蛍光媒体を含む表面の凹凸が、有機EL素子へ及ぼす影響は大きい。すなわち、二つの電極間のリークおよび電極の断線を及ぼすことになり、多色発光装置の駆動に悪影響を及ぼし、ひいては、多色発光装置の製造歩留りの低下につながる。

【0010】従って、特開平5-258860号公報では、蛍光媒体と有機EL素子の間に絶縁性平坦化層を配置して、蛍光媒体上の平坦化を図っているが、異なる蛍光媒体の厚さを揃えて平坦化するということは開示されていない。また、蛍光媒体の膜厚を10μm未満しているが、10μm未満では、蛍光体の蛍光性を發揮するには不十分である。

#### 【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上述の問題に鑑みなされたものであり、色ずれ（混色）の発生を防止し、視認性に優れ、実用的であるとともに、歩留りよく製造できる構成の多色発光装置を提供することを目的とする。

#### 【0012】

【発明が解決しようとする手段】上記目的を達成するため、本願発明によれば、透光性基板上に複数の遮光層と一以上の蛍光体層を含む複数の異なる色変換層とが互い違いに繰り返し平面的に分離配置された色変換部材と、色変換層に対応した位置に平面的に分離配置された複数の発光部材とが、各発光部材の光を色変換層が受光して異なる発光をするように配設された多色発光装置において、色変換部材の発光部材側の表面の凹凸が、2.0μm以下に平坦化されることを特徴とする多色発光装置が提供される。

【0013】また、その好ましい態様として、前記色変換部材と発光部材とが、それらの間に透光性媒体を挟んで配設されてなる多色発光装置が提供される。

【0014】また、その好ましい態様として、前記発光部材が、有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子である多色発光装置が提供される。

【0015】また、その好ましい態様として、前記色変換層の膜厚が、10μm以上である多色発光装置が提供される。

【0016】また、その好ましい態様として、前記色変換部材の発光部材側の表面が、研磨されてなる多色発光装置が提供される。

【0017】また、その好ましい態様として、前記色変換層の少なくとも一つが、透光性基板中に埋め込まれて

なる多色発光装置が提供される。

【0018】また、その好ましい態様として、前記色変換層の少なくとも一つが、透光性媒体で底上げされてなる多色発光装置が提供される。

【0019】また、その好ましい態様として、前記色変換層の少なくとも一つが、透光性媒体を含むものである多色発光装置が提供される。

【0020】さらに、その好ましい態様として、前記色変換層の少なくとも一つが、赤色に発光する蛍光体層である多色発光装置が提供される。

#### 【0021】

【発明の実施の形態】以下、本発明の多色発光装置の実施の形態を図面を参照しつつ具体的に説明する。

##### 1. 多色発光装置の構成

多色発光装置の一般的な構成は、図2に示すように、透光性基板1上に、複数の遮光層21と一以上の蛍光体層を含む複数の異なる色変換層22が互い違いに繰り返し平面的に分離配置されてなる色変換部材2と、色変換層22に対応した位置に平面的に分離配置された複数の発光部材3とが、各発光部材の光を色変換層が受光して異なる発光をするように配設される。各発光部材3が発光すれば、その光は、対応する色変換層22で変換されて発光部材3の光と異なる色の発光となり、視覚に到達する。このように異なる色変換層22が平面的に分離配置されることによって多色発光が可能となる。また、図3に示すように色変換部材2と発光部材3との間に透光性媒体4を設けてもよい。

【0022】本発明においては、図1に示すように、色変換部材2の発光部材3側の表面の凹凸を2.0μm以下に平坦化してなる多色発光装置を提案する。

【0023】ここで、色変換部材の発光部材側の表面の凹凸が平坦化されていない場合について説明する。図4(a)および(b)は、遮光層21の厚さを基準として、色変換層22がより厚くなる場合とより薄くなる場合とをそれぞれ示す。図4(a)に示す場合、ある特定の発光部材3から等方的に光が発せられて、色変換層（蛍光体層）22へ入光するが、入光した光は、色変換層22で変換され、再び等方的に光（蛍光）が発せられる。色変換層22は、遮光層21より厚いため、飛び出した色変換層22から隣接する色変換層への光の漏れが大きくなり、色ずれ（混色）の原因となる。

【0024】一方、図4(b)に示す場合は、色変換層22が遮光層21より薄いため、色変換層22から隣接する色変換層への入光は妨げられるが、逆に飛び出した遮光層21が発光部材3からの光を吸収したり、散乱させたりするので、その分発光部材3からの光を色変換層22が十分に受光することができなくなる（吸収効率が低下する）ので、変換後の光の輝度が低下し、視認性を低下させる原因となる。なお、遮光層の厚さがばらつく場合は、図4(a)および(b)のいずれかの問題を有

することとなる。従って、遮光層21と色変換層22の厚さを揃える、すなわち色変換部材2の発光部材3側の表面凹凸を平坦化することが多色発光装置の色ずれ（混色）を防止し、輝度向上させる等の視認性向上の意味で有利である。これは、図3に示すような色変換部材2と発光部材3の間に透光性媒体を挟む場合も同様である。

【0025】さらに、図5は、色変換部材2の各色変換層22に各発光部材（例えば有機EL素子31）を密着させ、色変換部材2の表面凹凸に発光部材を追随させた場合を示す。なお、有機EL素子31は、2つの電極32および33に有機物層34（主に発光層）を挟んだ構成であり、2つの電極32および33は、各々ストライア状であり、それらが交差した形状となっているものとする。

【0026】図5(a)は、色変換部材2の表面の凹凸の大きい場合を示し、この場合は、薄膜の有機EL素子31に歪み（ひずみ）を与える。この結果、有機EL素子31の2つの電極32および33間のリークまたは特に電極32の断線を引き起こし、多色発光装置の製造歩留まりを低下させる。図5(b)は、色変換部材2の表面の凹凸の小さい場合を示し、この場合は、有機EL素子31に歪みを与えることはない。その結果、多色発光\*

\* 装置の製造歩留まりを向上させる。

【0027】なお、図6に示すように、図5(a)の色変換部材2上に透明な平坦化層5、すなわち透光性媒体を積層して、色変換部材2の表面の凹凸を緩和させることができると、平坦化層5の膜厚を大きくしすぎると、発光部材（図示せず）からの光が漏れて色ずれ（混色）が発生し、しかも視野角を狭めることとなる。平坦化層5の膜厚は、色変換部材2および発光部材の精細度に依存し、小さければ小さい程前記問題がなくなる。但し、色変換部材2の表面の凹凸が小さいほど平坦化は容易になるし、平坦化層5の膜厚も小さくすることができる。

【0028】色変換部材2の表面凹凸の大きさと、発光部材としての有機EL素子を積層した多色発光装置を作製したときの歩留りとの関係を、表面凹凸の異なる基板上有機EL素子を作製したときの結果（表1）から推定することができる。すなわち表面の凹凸が $2.0\mu m$ 以下であれば、有機EL素子の断線またはショートによる輝度低下およびクロストーク（所望の場所以外のところが発光すること）が少ないことがわかり、色変換部材の表面の凹凸が多色発光装置の製造歩留りに影響を与えていると考えられる。

【0029】

【表1】

基板の表面凹凸 ( $\mu m$ )	輝度低下 <sup>1)</sup>	クロストーク <sup>1)</sup>
0. 2	なし	なし
0. 5	なし	なし
1. 0	なし	少しあり
2. 0	少しあり	少しあり
3. 0	あり	あり
4. 0	あり	あり
5. 0	あり	あり

1) 平滑な透光性基板（表面凹凸が $0.1\mu m$ 未満）上有機EL素子を作製した場合を基準とする。

【0030】図7に示すように、表面の凹凸の小さい色変換部材2として、その発光部材（図示せず）側の表面全体を研磨したものを挙げることができる。研磨は、遮光層21および色変換層22を形成後、すなわち色変換部材2作製後に行なわれ、例えば市販されている紙やすりやアルミナ、シリコンカーバイドからなるラッピングフィルム等で色変換部材2の表面をラッピングしたり、回転研磨機を使って、アルミナ等のセラミックス微粒子を研磨材として水洗いしながらポリッシングし、研磨面を鏡面化する手法が用いられる。また、図8(a)に示すように、色変換層22の中で膜厚の厚い層22aを透光性基板1中に埋め込んで膜厚を調整したものを挙げることができる。

【0031】また、図8(b)に示すように、色変換層

※22の中で膜厚の厚い層22aを透光性媒体4中に埋め込んで膜厚を調整したものを挙げることができる。

【0032】また、図9に示すように、色変換層22の中で膜厚の薄い層22bを透光性媒体4にて底上げして、膜厚を調整したものを挙げることができる。

40 【0033】さらに、図10に示すように色変換層22の中で膜厚の薄い層22bを透光性媒体4を含ませることによって膜厚調整したものを挙げができる。また、前記の構成を組み合わせたものであってもよい。

【0034】2. 各構成要素について

(1) 透光性基板

本発明に用いられる透光性基板は、多色発光装置を支持する基板であり、 $400\text{nm} \sim 700\text{nm}$ の可視領域の光の透過率が50%以上で、平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・スト

ロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルファン等を挙げることができる。ここで、透光性基板中に色変換層を埋め込んだ場合は、予めまたは遮光層形成後、フォトリソグラフィー法または印刷法等にて、レジストで所望のパターンを形成しておき、サンドblast等の物理的な方法またはフッ酸等による化学エッチングで、透光性基板に色変換層を埋め込む予定の適当な深さの溝を作製しておけばよい。

#### 【0035】(2) 色変換層

本発明に用いられる色変換層は、一以上の蛍光体層を含むものであるが発光部材の光を分解またはカットして色調整する意味のカラーフィルタを含んでいてもよい。

【0036】蛍光体層としては、例えば、蛍光色素および樹脂、または蛍光色素のみからなり、蛍光色素および樹脂からなるものは蛍光色素を顔料樹脂および/またはバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げができる。具体的な蛍光色素について説明する。まず、近紫外光からは紫色の有機E-L素子の発光から青色発光に変換する蛍光色素としては、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン(以下Bis-MSB)、トランス-4, 4'-ジフェニルスチルベン(以下DPS)の等スチルベン系色素、7-ヒドロキシ-4-メチルクマリン(以下クマリン4)等のクマリン系色素を挙げができる。

【0037】次に、青色、青緑色または白色発光部材の発光から緑色発光に変換する蛍光色素については、例えば、2, 3, 5, 6-1H, 4H-テトラヒドロ-8-トリフロルメチルキノリジノ(9, 9a, 1-g-h)クマリン(以下クマリン153)、3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(以下クマリン6)、3-(2'-ベンズイミダゾリル)-7-N, N-ジエチルアミノクマリン(以下クマリン7)等のクマリン色素、他クマリン色素系染料であるがベーシックイエロー-51、また、ソルベントイエロー-11、ソルベントイエロー-116等のナフタルイミド色素を挙げることができる。

【0038】また、青色から緑色までの、または白色の発光部材の発光から、橙色から赤色までの発光に変換する蛍光色素については、例えば、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチルリル)-4H-ピラン(以下DCM)等のシアニン系色素、1-エチル-2-(4-(p-ジメチルアミノフェニル)-1, 3-ブタジエニル)-ピリジニウム-パークロレート(以下ピリジン1)等のピリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G等のローダミン系色素、他にオキサジン系が挙げられる。

【0039】さらに、各種染料(直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料等)も蛍光性があれば選択することが可能である。また、前記蛍光色素をポリメタクリル酸エステル、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル酢酸ビニル共重合体、アルキッド樹脂、芳香族スルホニアミド樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂等の顔料樹脂中にあらかじめ練りこんで顔料化したものでもよい。

【0040】また、これらの蛍光色素または顔料は、必要に応じて、単独または混合して用いてもよい。

【0041】一方、バインダー樹脂は、透明な(可視光50%以上)材料が好ましい。例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂(高分子)が挙げられる。

【0042】なお、蛍光体層を平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィー法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、

20 ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ(メジウム)が選ばれる。例えば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキッド樹脂、エボキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマーまた、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0043】蛍光体層が主に蛍光色素からなる場合は、所望の蛍光体層パターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、蛍光色素と樹脂からなる場合は、蛍光色素と樹脂と適当な溶剤とを混合、分散または可溶化させて液状とし、スピンドルコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、フォトリソグラフィー法で所望の蛍光体層パターンでパターンングしたり、スクリーン印刷等の方法で所望の蛍光体層パターンでパターンングするのが一般的である。

【0044】蛍光体層の膜厚は、有機E-L素子の発光を十分に受光(吸収)し、蛍光を発生する機能を妨げるものでなければ制限はないが、10nm~1mm、好ましくは、1μm~1mm、より好ましくは10μm~100μmでカラーフィルタに比べて、一般に厚膜が必要となる。蛍光色素はカラーフィルタ色素に比べて濃度に敏感で、顔料樹脂またはバインダー樹脂中により低濃度で分散または可溶化させたほうがより蛍光性が高いが、一方、有機E-L素子の発光を十分に吸収しなければならないので、カラーフィルタ並の吸光度が必要である。従つ

て、Lambert-Beerの法則下記(式1)により、色素の吸光係数を一定とするならば結局蛍光体層は、厚膜となるのが好ましいことになる。蛍光色素の顔料樹脂および/またはバインダー樹脂を含めた蛍光体層中の濃度は、蛍光色素によって異なるが、 $1 \sim 10^{-4} \text{ mol/l}$ \*

$$\text{Lambert-Beerの法則}$$

$$A = \epsilon c l$$

A : 吸光度

$\epsilon$  : 吸光係数(色素に固有)

c : 色素濃度

l : 膜厚

そこで色変換部材の発光部材側の表面の凹凸を平坦化するには、各色変換層(蛍光体層またはカラーフィルタ層)の膜厚を揃えることが有利であるので、各色変換層の膜厚は蛍光性を考慮して $10 \mu\text{m}$ 以上とすることが好ましい。

【0046】なお、赤色に発光する蛍光体層は、発光部材の波長からより大きく長波長側にシフトした蛍光を発する(ストークスシフトが大きい)層なので、一般に複数種の蛍光色素を混合して含む。よって蛍光色素の濃度が大きくなるので、先に記載したように発光部材の発光を十分に吸収して、かつ蛍光性を高めるためには赤色蛍光体層の膜厚は大きくなる。従って、特に図8(a)および(b)に示す場合のように、透光性基板1中または透光性媒体4中に埋め込む色変換層22としては、赤色蛍光体層が挙げられる。

【0047】一方、カラーフィルタ層としては、例えば、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げができる。

【0048】赤色(R)色素:ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノン系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0049】緑色(G)色素:ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェニルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0050】青色(B)色素:銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0051】前記バインダー樹脂としては、蛍光体層と同様の材料を選ぶことができる。また、カラーフィルタを平面的に分離配置するために必要なバインダー樹脂も蛍光体層と同様の材料を選ぶことができる。

【0052】また、特にカラーフィルタが主に色素からなる場合も、色素とバインダー樹脂からなる場合も蛍光※50

\*  $0.1 \text{ mol/l}$ 、好ましくは $0.1 \sim 10^{-3} \text{ mol/l}$ 、より好ましくは、 $0.05 \sim 10^{-2} \text{ mol/l}$ である。

#### 【0045】

#### (式1)

※体層と同様にパターニングできる。

【0053】カラーフィルタが、色素とバインダー樹脂10からなるものは、色素の濃度は、カラーフィルタが問題なくパターニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。一般的には、色素の種類にもよるが、使用するバインダー樹脂を含めたカラーフィルタ膜に色素が5~50重量%含まれる。

#### 【0054】(3) 遮光層

本発明において、遮光層は、発光部材の光を遮光して、多色発光装置の混色を防止し、視野角特性を向上させるために用いられる。遮光層の膜厚は $10 \text{ nm} \sim 1 \text{ mm}$ 、好ましくは $1 \mu\text{m} \sim 1 \text{ mm}$ 、より好ましくは $10 \mu\text{m} \sim 20 100 \mu\text{m}$ であるが、上記したように、色変換層が蛍光体の場合は、カラーフィルタの場合に比べて厚膜が必要となり、その色変換層と遮光層の厚さを揃えて平坦化するには、遮光層の膜厚も $10 \mu\text{m}$ 以上が好ましい。また、遮光層の表面形状は格子状でもストライプ状でもよいが、色変換層が蛍光体層の場合には、蛍光体層側面からの光の漏れが著しいので格子状がより好ましい。また、遮光層の断面形状は、通常は矩形状であるが、逆台形状またはT文字形状であってもよい。

【0055】遮光層の透過率は、発光部材の光または色変換層(特に蛍光体層)からの光を発する領域、すなわち波長 $400 \text{ nm} \sim 700 \text{ nm}$ の可視領域における光において10%以下であることが好ましく、1%以下がさらに好ましい。10%を超えると発光部材の光または色変換層からの光が漏れて多色発光装置の色ずれ(混色)を発生させ、視野角特性も悪化させる。また、必要に応じて、少なくとも遮光層の側面を反射性のものにしてもよい。

【0056】次に、遮光層の材料としては、例えば以下の金属及び黒色色素を挙げることができる。金属の種類としては、Ag, Al, Au, Cu, Fe, Ge, In, K, Mg, Ba, Na, Ni, Pb, Pt, Si, Sn, W, Zn, Cr, Ti, Mo, Ta, ステンレス等の一種以上の金属または合金が挙げられる。また、上記金属の酸化物、窒化物、硫化物、硝酸塩、硫酸塩等を用いてもよく、必要に応じて炭素が含有されていてもよい。

【0057】上記材料は、スパタリング法、蒸着法、CVD法、イオンプレーティング法、電析法、電気メッキ法、化学メッキ法等の方法により、透光性基板状に成膜され、フォトリソグラフィー法等によりパターニングを

11

行って、遮光層のパターン（平面的に分離配置）を形成することができる。

【0058】黒色色素としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラック、前記カラーフィルタ色素を混合して黒色化したものが挙げられる。これらの黒色色素または前記金属材料を色変換層で用いたバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態とし、色変換層と同様な方法でパターニングして遮光層のパターンを形成する。

#### 【0059】(4) 透光性媒体

本発明において、透光性媒体は、必要に応じて、色変換部材と発光部材との間に設けられ、また、色変換層および遮光層の底上げや、色変換層の埋め込みにも用いられる。また、色変換層中に含ませて用いられる。400nm～700nmの光の透過率が50%以上が好ましく、電気絶縁層性のものであれば、より好ましい。特に、色変換部材と発光部材との間に設ける場合、透光性媒体は単層でもよいし、多層に構成されていてもよい。また固相、液相、気相状態のいずれであってもよい。

【0060】透光性媒体をポリマー層とする場合、そのポリマーとして、具体的には、光硬化型樹脂および／または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の反応性ビニル基を有するものを挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマー、ポリメチルメタクリレート、ボリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルビロドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂、および各種フッ素ポリマーを挙げることができる。また、蛍光体層の耐光性を高めるために、紫外線吸収材を添加することもできる。

【0061】また、無機酸化物層とする場合、具体的には、酸化ケイ素(SiO<sub>2</sub>)、酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化チタン(TiO<sub>2</sub>)、酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化ゲルマニウム(GeO<sub>2</sub>)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、ほう酸(B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化ストロンチウム(SrO)、酸化バリウム(BaO)、酸化鉛(PbO)、ジルコニア(ZrO<sub>2</sub>)、酸化ナトリウム(Na<sub>2</sub>O)、酸化リチウム(Li<sub>2</sub>O)、酸化カリウム(K<sub>2</sub>O)等を挙げることができる。

【0062】また、無機酸化物層として、ガラスを挙げることができる。特に、ソーダー石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミニケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス等を挙げができる。なお、ここで無機酸化物層は、その組成として、無機酸化物を主に含むものであればよく、窒化物（例えばSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>）が含まれていても

12

よい。

【0063】なお、発光部材と、色変換部材とを接着させるためには以下のような接着剤を用いることができる。具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化および熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステルなどの温氣硬化型等の接着剤を挙げができる。また、エポキシ系などの熱および化学硬化型（二液混合）を挙げができる。

10 【0064】また、気相および液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体や、フッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体が挙げられる。また、真空とともに可能である。

【0065】これらの透光性媒体は、固体状の材料を適當な溶媒で液状とし、スピンドルコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、固体状の材料をそのまま使用する場合は、スパッタリング、蒸着、CVD、イオンプレーティング等の方法で成膜される。ガラス板の場合は、先の接着剤を用いて貼り合わせる。不活性液体や不活性気体は、多色発光装置の発光領域外をシーリングして封入する。

【0066】これらの透光性媒体として、たとえば有機EL素子と接する界面は、前記無機酸化物層か、または不活性液体もしくは不活性気体とするのが有機EL素子の劣化を促進する水、酸素を遮断できるので好ましい。

【0067】ここで、透光性媒体で色変換層の底上げを行ったり、透光性媒体中に色変換層を埋め込むためには、例えば、予めまたは遮光層形成後、前記透光性媒体の中の光硬化型樹脂および／または熱硬化型樹脂を用い、フォトリソグラフィー法または印刷法で所望の適當な膜厚のパターンで底上げを行なったり、色変換層を埋め込むための適當な深さの溝を形成すればよい。また、色変換層中に透光性媒体を含ませるには、前記透光性媒体の固体状の材料を色変換層のバインダー樹脂または顔料樹脂とは別に追加し、溶解または分散させて含まなければよい。

#### 【0068】(5) 発光部材

本発明に用いられる発光部材としては、有機EL素子が、薄型で面発光であり、かつ有機化合物の種類が豊富で様々な色の光を高効率、高輝度で発することができるので好ましいが、無機EL、LED、VFD、PDP、場合によってはLCDの光源を利用することができる。有機EL素子は、有機物層として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明においては、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じ、発光層以外に、例えば正孔注入層、電子注入層、有機半導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

50 【0069】次に本発明に用いられる有機EL素子の代

13

表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるものではない。

- ①陽極／発光層／陰極
- ②陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- ③陽極／発光層／電子注入層／陰極
- ④陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- ⑤陽極／有機半導体層／発光層／陰極
- ⑥陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
- ⑦陽極／正孔注入層／発光層／付着改善層／陰極

などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常 10  
④の構成が好ましく用いられる。

【0070】(5)-1. 陽極

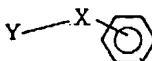
陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI, ITO, SnO<sub>2</sub>, ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくなることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm~1μm、好ましくは10~200nmの範囲で選択される。

【0071】(5)-2. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられる。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

【0072】

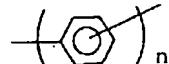
【化1】



【0073】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

【0074】

【化2】



【0075】ここでnは、2, 3, 4または5である。また、Yは下記化合物を示す。

【0076】

【化3】

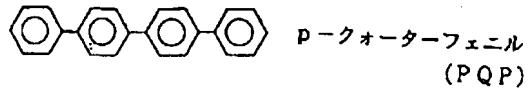


【0077】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1~4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよ。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成のために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、p-クオーターフェニル誘導体、p-クインクフェニル誘導体が好ましい。

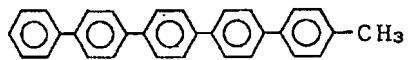
【0078】

30 【化4】

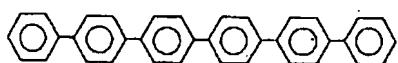
15



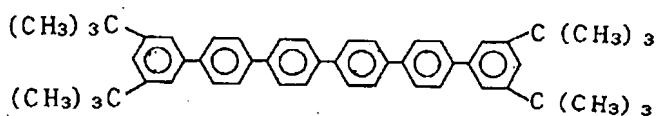
(2)



(3)



(4)



3, 5, 3……, 5……-テトラ-*t*-ブチル-ヤキシフエニル

(TBS)

(5)



【0079】  
【化5】

(10)

特開平10-241860

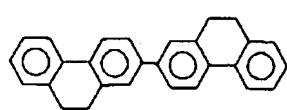
17

18

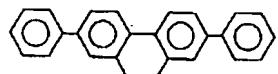
(6)

【0080】

【化6】

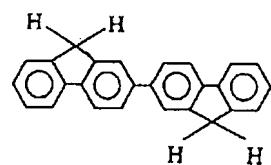


(7)



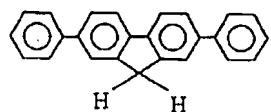
10

(8)

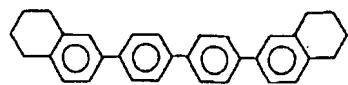


20

(9)



(10)



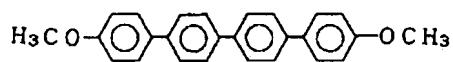
30

(11)

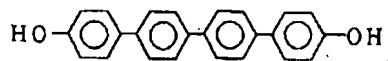
19  
(11)

特開平10-241860

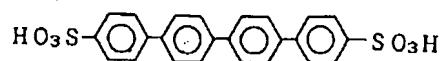
20



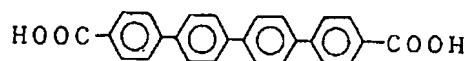
(12)



(13)



(14)

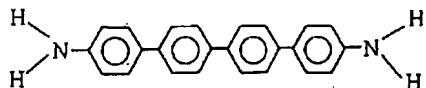


【0081】

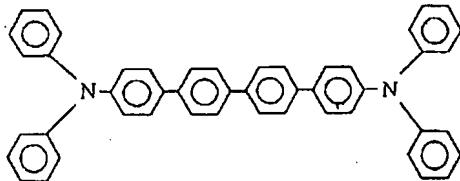
\* \* 【化7】

21  
(15)

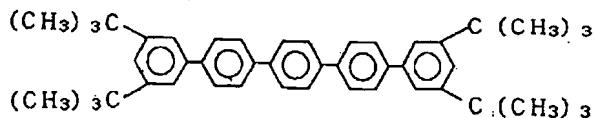
22



(16)



(17)

3, 5, 3'', 5'''-テトラ-*t*-ブチル-*p*-クインクフェニル

(TBQ)

【0082】次に、青色から緑色の発光を得るために  
は、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール  
系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレー  
ト化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を  
挙げることができる。

【0083】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開  
昭59-194393号公報に開示されているものを挙  
げることができる。その代表例としては、ベンゾオキサ  
ゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系  
等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有  
用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・  
ダイズ1971, 628~637頁および640頁に列  
挙されている。

【0084】前記キレート化オキシノイド化合物とし  
ては、例えば特開昭63-295695号公報に開示され  
ているものを用いることができる。その代表例とし  
ては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下A  
1qと略記する)等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯  
体やジリチウムエビントリジオン等を挙げることで  
きる。

【0085】また、前記スチリルベンゼン系化合物とし  
ては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州  
特許第0373582号明細書に開示されているものを\*

\*用いることができる。

【0086】また、特開平2-252793号公報に開  
30示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料  
として用いることができる。その他のものとして、例え  
ば欧州特許第0387715号明細書に開示されている  
ポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いること  
もできる。

【0087】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレー  
ト化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化  
合物等以外に、例えば1,2-フタロペリノン(J. Appl.  
Phys., 第27巻, L713(1988年))、1,4-  
ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-  
40テトラフェニル-1,3ブタジエン(以上Appl. Phys.  
Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタル  
イミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリ  
レン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサ  
ジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、ま  
たは第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによ  
って開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘  
導体(特開平2-220393号公報)、ピラジリン誘  
導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタ  
ジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ビロ  
ロビロール誘導体(特開平2-296891号公報)、

スチリルアミン誘導体 (Appl. Phys. Lett., 第56巻, L 799 (1990年))、クマリン系化合物 (特開平2-191694号公報)、国際公開公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982(1991)に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材料として用いることができる。

【0088】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリディン系化合物 (欧洲特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの) を用いることが好ましい。具体例としては、4, 4'-ビス(2, 2-ジ-*t*-ブチルフェニルビニル) ビフェニル、(以下、DTBPB*i*と略記する)、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル) ビフェニル (以下DPVB*i*と略記する) 等、およびそれらの誘導体を挙げることができる。

【0089】さらに、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式 ( $R_s - Q - 2 - AL - O - L$  であらわされる化合物も挙げられる。(上記式中、Lはフェニル部分を含んでなる炭素原子6~24個の炭化水素であり、O-Lはフェノラート配位子であり、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、 $R_s$  はアルミニウム原子に置換8-キノリノラート配位子が2個を上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノラート環置換基を表す) 具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(バラーフェニルフェノラート)アルミニウム(III) (以下PC-7)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム(III) (以下PC-17) 等が挙げられる。その他、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては上記に記載した発光材料、ドーバントとしては、青色から緑色にまでの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記記載のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げることができる。具体的には、ホストとしてジスチリルアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは例えばDPVB*i*、ドーバントとしてはジフェニルアミノビニルアリーレン、特に好ましくは例えばN, N-ジフェニルアミノビニルベンゼン(DPAVB)を挙げることができる。

【0090】白色の発光を得る発光層としては、特に制限はないが下記のものを挙げることができる。

①有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの (ヨーロッパ公開特許第0390551号公報)

②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの (特開平3-230584号公報)

③二層構造の発光層が記載されているもの (特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公

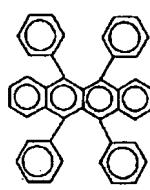
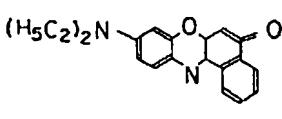
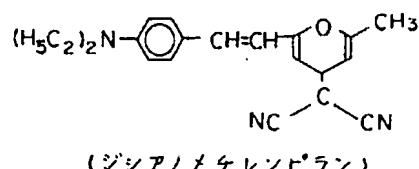
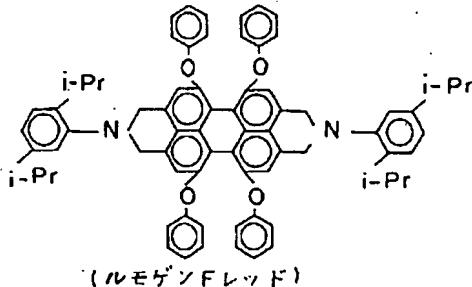
報) ④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの (特開平4-51491号公報)

⑤青色発光体 (蛍光ピーク380nm~480nm) と緑色発光体 (480nm~580nm) とを積層させ、さらに赤色蛍光体を含有させた構成のもの (特開平6-207170号公報)

⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色蛍光体を含有する構成のもの (特開平7-142169号公報) 中でも、⑤の構成のものが好ましく用いられる。また、赤色蛍光体の例を【化8】に示す。

【0091】

【化8】



【0092】前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンドルコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜 (分子累積膜) とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違に

より区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピニコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。このようにして、形成される発光層の膜厚については特に制限ではなく、状況に応じて適宜選択することができるた、通常5nm～5μmの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。すなわち、①注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができる機能、②輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能、③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であらわされる輸送能に大小があてもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

## 【0093】(5)-3. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6$  V/cmの電界印加時に、少なくとも $10^{-6}$  cm<sup>2</sup>/V・秒であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限ではなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0094】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許3,112,197号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許3,189,447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ポリアリールアルカン誘導体（米国特許3,615,402号明細書、同第3,820,989号明細書、同第3,542,544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体（米国特許3,180,729号明細書、同第4,278,746号明細書、特開昭55-8064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同

57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第3,567,450号明細書、同第3,180,703号明細書、同第3,240,597号明細書、同第3,658,520号明細書、同第4,232,103号明細書、同第4,175,961号明細書、同第4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3,526,501号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第3,257,203号明細書等に開示のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドロゾン誘導体（米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第4,950,950号明細書）、ポリシラン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系共重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等に開示のもの）、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物（米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照）、特に芳香族第三級アミン化合物を用いること

27

が好ましい。また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスター-バースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物の他、p型-Si, p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができます。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドロート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができます。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm～5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半\*

28

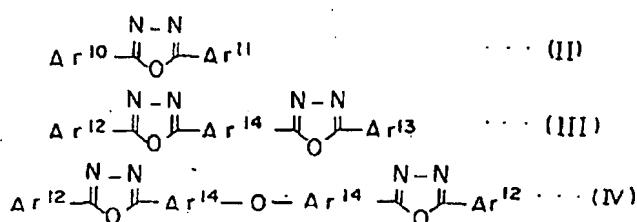
\*導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

## 【0095】(5)-4電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、例10 えば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシン(一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキソイド化合物が挙げられる。例えば先に記載したA19を電子注入層として用いることができる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II), (III)および(IV)

## 【0096】

## 【化9】



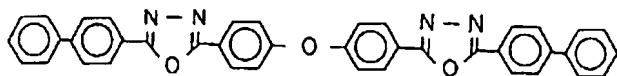
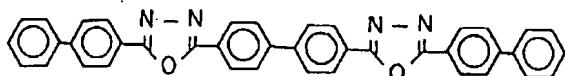
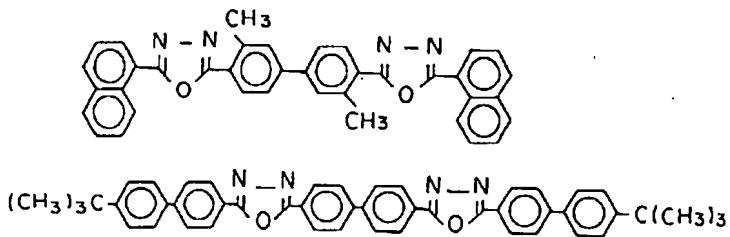
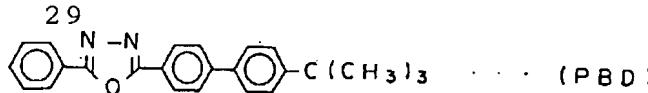
【0097】(式中Ar<sup>10</sup>～Ar<sup>13</sup>はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、Ar<sup>10</sup>とAr<sup>11</sup>およびAr<sup>12</sup>とAr<sup>13</sup>はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なるっていてもよく、Ar<sup>14</sup>置換または無置換のアリレン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ビレニル基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ベ※40

※ニレニレン基、ビレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

## 【0098】

## 【化10】

30



## 【0099】(5)-5. 陰極

陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム(A<sub>12</sub>O<sub>3</sub>)、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は通常10nm~1μm、50~200nmの範囲が好ましい。なお、本発明に用いられるEL素子においては、該陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよいので好ましい。

## 【0100】(5)-6. 有機EL素子の作製(例)

以上例示した材料および方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、さらに陰極を形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0101】以下に支持基板上に陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基板上に、陽極材料からなる薄膜を1μm以下、好ましくは10~200nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して、陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピニコート法、キャスト法、LB法等の方法により行なうことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等<sup>50</sup>

\*の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450°C、真空度10<sup>-7</sup>~10<sup>-3</sup>torr、蒸着速度0.01~50nm/sで、基板温度50~300°C、膜厚5nm~5μmの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0102】次に正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、スピニコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ様な条件範囲の中から選択することができる。

【0103】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。

【0104】最後に、陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。

【0105】これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

【0106】なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5~40Vの

31

電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

【0107】ここで、平面的に分離配置して発光する有機EL素子を作製するには、ストライプ状の陽極および陰極を交差させ、それぞれの電極に直流電圧を印加し、交差部分を発光させるX-Yドットマトリックス方式と陽極または陰極のいずれかをドット状に形成し、TFT (Thin Film Transistor) のようなスイッチング素子にて特定のドット部分だけに直流電圧を印加して発光させるアクティブマトリックス方式が挙げられる。ストライプ状またはドット状の陽極および陰極はフォトリソグラフィー法にてエッチングするかリフトオフするか、またはマスキング蒸着等の方法にて形成することができる。

【0108】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

【実施例1】(研磨による平坦化)

透光性基板として100mm×100mm×1.1mm厚のガラス基板(コーニング7059)上に、3重量% (対固形分) のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジスト(粘度250cps)をスピンドルし、80°Cでベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、50μmライン、250μmギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを介して、900mJ/cm<sup>2</sup> (365nm) で露光した。1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像後、基板のガラス面から3000mJ/cm<sup>2</sup>で全面後露光してから200°Cでベークして遮光層のパターンを形成した。遮光層の膜厚は、20μmであった。次に、基板をスクリーン印刷機にセットし、250μm×650μmギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、銅フタロシアニン系顔料(C.I.ビグメントブルー15:6)2.8重量% (対固形分) と、ジオキサン系顔料(C.I.ビグメントバイオレット23)0.2重量% (対固形分) と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂(重量平均分子量2万)97重量%とを、溶剤としてのシクロヘキサン中に混合分散したインキ(粘度8000cps)を遮光層のパターンの間隙に印刷し、80°Cでベークして、青色カラーフィルタ層のパターンを得た。青色カラーフィルタ層の膜厚は15μm前後であった。次に、版を青色カラーフィルタ層のパターンのストライプ配列に対して垂直方向へ300μm平行移動して、クマリン6と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂(平均分子量2万)とを、クマリン6の配合量をポリ塩化ビニル樹脂1kgに対し0.03molとなるようにして、溶剤としてのシクロヘキサン中に溶解したインキ(粘度8000cps)

32

を遮光層パターンの別の間隙に印刷し、80°Cでベークして、蛍光体層Aのパターンを得た。蛍光体層Aの膜厚は15μm前後であった。次に、版を蛍光体層Aのパターンのストライプ配列に対してさらに垂直方向へ300μm平行移動して、クマリン6と、4重量% (対ベンゾグアナミン樹脂) のローダミン6Gおよび4重量% (対ベンゾグアナミン樹脂) のローダミンBをベンゾグアナミン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂(平均重量分子量2万)とを、クマリン6の配合量を、ローダミン6GおよびローダミンBをベンゾグアナミン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料とポリ塩化ビニル樹脂との合計量1kgに対し0.03mol、蛍光顔料の配合量を30重量%、並びにポリ塩化ビニル樹脂の配合量を70重量%となるようにして、これらを溶剤としてのシクロヘキサンに溶解したインキ(粘度8000cps)を遮光層のパターンのさらに別の間隙に印刷し、80°Cでベークして、蛍光体層Bのパターンを得た。蛍光体層Bの膜厚は20μm前後であった。次に、800番の紙やすりで、純水を噴霧しながら色変換部材上をラッピング研磨し、次に回転研磨機(Speed Fam社製)により、アルミナの微粒子研磨剤を用いて純水を噴霧しながら鏡面研磨(ボリッシング)した。以上より、色変換部材を作製し(図7(b))、表面粗さ計(DEKTAK 3030)で色変換部材の表面凹凸を測定すると、0.2μmに平坦化され、また、色変換層すなわち青色カラーフィルタ、蛍光体層A、Bの膜厚はそれぞれ15μm前後であった。なお、後で積層する有機EL素子の発光輝度および色度を確認するため、ごく一部の遮光層および色変換層を削つておいた。さらに、透光性媒体として、酸化ケイ素(SiO<sub>2</sub>)を基板温度160°Cに加熱し、10<sup>-6</sup>torrの真空中にてスパッタリングした。膜厚は0.5μmであった。なお、酸化ケイ素膜の成膜後も表面凹凸を測定すると、0.2μmで変化はなかった。次に、有機EL素子の作製を行った。まず、基板を160°Cに加熱し、10<sup>-6</sup>torrの真空中にて、酸化ケイ素膜上にスパッタリングにより、0.15μmの膜厚、表面抵抗20Ω/□のITO(インジウム錫酸化物)の透明電極(陽極)を成膜した。次に、ポジ型フォトレジスト(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204)をITO上にスピンドルし、80°Cでベークした後、露光機にて、250μmライン、50μmギャップのストライプ状のITOパターンが得られるマスクを介し、遮光層パターンに位置合わせをして、100mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、2.38重量%TMAH(テトラメチルアンモニウムヒドロキシド)水溶液にてレジストを現像し、120°Cにてポストベークし、レジストパターンを形成し得た。次に、基板を室温の4.7重量%の臭化水素水溶液に浸漬して、ITO、レジストパターン露出している部分をエッチングし、レジストを剥離して、

## 33

$250\mu m$  ライン、 $50\mu m$  ギャップのストライプ状のITOパターンを形成した。次に、この基板をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置（日本真空技術社製）基板ホルダーに固定した。蒸着源は、モリブデン製の抵抗加熱ポートに正孔注入材料としてMTDATA及びNPD、発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、陰極の第二金属としてAgをタンクステン製フィラメントに、陰極の電子注入性金属としてMgをモリブデン製ポートに装着した。その後、真空槽を $5 \times 10^{-7}$  torrまで減圧後、以下の順序で順次積層していった。正孔注入層から陰極まで途中で真空を破らず一回の真空引きでおこなった。まず、正孔注入層としては、MTDATAを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 nm/s$ 、膜厚 $200 nm$ 、NPDを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 nm/s$ 、膜厚 $20 nm$ 、発光層としてはDPVBiを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 nm/s$ 、DPAVBを蒸着速度 $0.05 nm/s$ で同時蒸着して併せて膜厚 $40 nm$ （ホスト材料に対するドーパントの重量比は $1.2 \sim 1.6$ ）とし、電子注入層としては、Alqを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 nm/s$ 、膜厚 $20 nm$ 、陰極としては、陽極ITOストライプパターンに対し垂直とし、 $600\mu m$  ライン、 $100\mu m$  ギャップのストライプパターンになるようなマスクを介して、MgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度 $1.3 \sim 1.4 nm/s$ 、Agは、蒸着速度 $0.1 nm/s$ で膜厚を $200 nm$ とした。このようにして、有機EL多色発光装置を作製し（図3）、直流 $8 V$ の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100 cd/m^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $50 cd/m^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ で色純度の高い青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $113 cd/m^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $22 cd/m^2$ 、色度は $x=0.55$ 、 $y=0.29$ で赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製し、各色変換層から本来の色の発光が得られ色ずれ（混色）は見られなかった。

## 【0109】〔実施例2〕（透光性基板中への埋め込み）

透光性基板上に実施例1のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジストのスピンドルコートの回転数を大きくしたこと以外は、実施例1と同一の条件で追

## 34

光層のパターンを形成した。遮光層の膜厚は、 $15\mu m$ であった。次に、基板上にドライフィルムレジスト（富士フィルム社製A-840）をラミネートし、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、 $650\mu m$  ライン、 $250\mu m$  ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを遮光層のパターンと平行になるよう位置合わせして、 $60 mJ/cm^2$  ( $365 nm$ ) で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像すると、レジストのパターンは、遮光層間のストライプパターンの3本につき1本開口し、その開口部には透光性基板が露出していた。次に、その開口部に向けてサンドブラスト処理を行ない、透光性基板に $5\mu m$  の深さで溝を形成した。次に、3重量%の水酸化ナトリウム水溶液で1分間 $50^\circ C$ で処理すると、レジストが剥離できた。以下、実施例1の蛍光体層Bを先の透光性基板に溝を形成した部分に埋め込んだことおよび研磨しなかったこと以外は、実施例1と同一の条件で色変換部材を作製した（図8（a））。表面粗さ計（DEKTAK 3030）で色変換部材の表面凹凸を測定すると青色カラーフィルタおよび蛍光体層Aの膜厚は $15\mu m$ 前後、蛍光体層Bの膜厚は $20\mu m$ 前後であるにもかかわらず、 $1.5\mu m$ に平坦化されていた。以下、実施例1と同一の条件で酸化ケイ素膜および有機EL素子を作製して、有機EL多色発光装置を作製した。次に、直流 $8 V$ の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100 cd/m^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $50 cd/m^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ で色純度の高い青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $113 cd/m^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20 cd/m^2$ 、色度は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で実施例1より純度の高い赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したところ、各色変換層から本来の発光が得られ色ずれ（混色）は見られなかった。

【0110】〔実施例3〕（透光性媒体による底上げ）

実施例1と同一の条件で遮光層を形成した（遮光層の膜厚 $20\mu m$ ）。次に、この基板上に透光性媒体としてアクリレート系光硬化型レジスト（新日鉄化学社製V259PA）をスピンドルコートし、 $80^\circ C$ でベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、 $250\mu m$  ライン、 $650\mu m$  ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを遮光層のパターンと平行になる

35

ように位置合わせして、 $300\text{mJ}/\text{cm}^2$  ( $365\text{nm}$ )で露光した。そして、さらにマスクを $300\mu\text{m}$ 遮光層のパターンに対して垂直に移動して同条件で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像すると、レジストのパターンは、遮光層間のストライプパターンの3本につき2本の内部に充填された。次に、 $200^\circ\text{C}$ でベークして透光性媒体のパターンを形成した。透光性媒体の膜厚は、 $5\mu\text{m}$ であった。以下、実施例1の青色カラーフィルタ層および蛍光体層Aを先の透光性媒体で充填された(底上げされた)部分に印刷したことおよび研磨しなかったこと以外は、実施例1と同一の条件で色変換部材を作製した(図9)。表面粗さ計(DEK TAK 3030)で色変換部材の表面凹凸を測定すると青色カラーフィルタおよび蛍光体層Aの膜厚は $15\mu\text{m}$ 前後、蛍光体層Bの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であるにもかかわらず、 $1.3\mu\text{m}$ に平坦化されていた。以下、実施例1と同一の条件で酸化ケイ素膜および有機EL素子を作製して、有機EL多色発光装置を作製した。次に、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標(JIS Z 8701)はそれぞれ $100\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $50\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.12$ でさらに色純度の高い青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $113\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色(イエロイッシュグリーン)の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で実施例1より純度の高い赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したところ、各色変換層から本来の色の発光が得られ色ずれ(混色)は見られなかった。

#### 【0111】[実施例4] (透光性媒体中への埋め込み)

実施例1と同じ透光性基板上に、透光性媒体としてアクリレート系光硬化型レジスト(新日鉄化学社製V259PA)をスピンドルコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、 $650\mu\text{m}$ ライン、 $250\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを予め遮光層のパターンと平行になる位置に配置し、 $300\text{mJ}/\text{cm}^2$  ( $365\text{nm}$ )で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像し、 $200^\circ\text{C}$ でベークして透光性媒体のパターンを形成した。透光性媒体の膜厚は、 $5\mu\text{m}$ であった。次に、3重量%(対固形分)のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジスト(粘度250

36

cps)を実施例2の条件でスピンドルコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、 $50\mu\text{m}$ ライン、 $250\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを前記透光性媒体のパターンと平行になるように位置合わせして、 $900\text{mJ}/\text{cm}^2$  ( $365\text{nm}$ )で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像し、透光性基板のガラス面(裏面)から $3000\text{mJ}/\text{cm}^2$ で全面後露光してから、 $200^\circ\text{C}$ でベークした。遮光層の膜厚は $15\mu\text{m}$ であった。透光性媒体のパターンは、遮光層間のストライプパターンの3本に1本開口し、その開口部には透光性基板が露出していた。以下、蛍光体層Bを先の透光性媒体の開口部分に埋め込んだことおよび研磨しなかったこと以外は、実施例1と同一の条件で色変換部材を作製した(図8(b))。表面粗さ計(DEK TAK 3030)で色変換部材の表面凹凸を測定すると青色カラーフィルタおよび蛍光体層Aの膜厚は $15\mu\text{m}$ 前後、蛍光体層Bの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後にもかかわらず、 $1.5\mu\text{m}$ に平坦化されていた。以下、実施例1と同一の条件で酸化ケイ素膜および有機EL素子を作製して、有機EL多色発光装置を作製したところ、実施例2と同一の結果が得られた。

【0112】[実施例5] (透光性媒体を含有する色変換層)

実施例1と同一の条件で遮光層を形成した(遮光層の膜厚 $20\mu\text{m}$ )。次に、基板をスクリーン印刷機にセットし、 $250\mu\text{m}$ ライン、 $650\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、銅フタロシアニン系顔料(C.I.ビグメントブルー15:6)2.8重量%(対固形分)と、ジオキサン系顔料(C.I.ビグメントバイオレット23)0.2重量%(対固形分)と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂(重量平均分子量2万)70重量%と、透光性媒体としてのポリビニルビロリドン(重量平均分子量4万)27重量%とを用い、これらを溶剤としてのシクロヘキサン中に分散したインキ(粘度13000cps)を遮光層パターンの空隙中に印刷し、 $80^\circ\text{C}$ でベークして、青色カラーフィルタのパターンを得た。青色カラーフィルタの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であった。次に、版をストライプに対して垂直方向へ $300\mu\text{m}$ ずらして、クマリン6と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂(平均重量分子量2万)と、透光性媒体としてのポリビニルビロリドン(重量平均分子量4万)とを、クマリン6の配合量を、ポリ塩化ビニル樹脂とポリビニルビロリドンとの合計量1kgに対し0.03mol、ポリ塩化ビニル樹脂の配合量を70重量%、並びにポリビニルビロリドンの配合量を30重量%となるようにして、これらを溶剤としてのシクロヘキサンに溶解したインキ(粘度12000cps)を遮光層のパターンのさらに別の間隙に印刷し、 $80^\circ\text{C}$ でベークし、蛍光体層Cのパターンを

37

得た。蛍光体層Cの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であった。次に、版を蛍光体層Aのパターンのストライプ配列に対してさらに垂直方向へ $300\mu\text{m}$ 平行移動して、クマリン6と、4重量%（対ベンゾグアニン樹脂）のローダミン6Gおよび4重量%（対ベンゾグアニン樹脂）のローダミンBをベンゾグアニン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂（平均重量分子量2万）とを、クマリン6の配合量を、ローダミン6GおよびローダミンBをベンゾグアニン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料とポリ塩化ビニル樹脂との合計量1kgに対し $0.03\text{mol}$ 、蛍光顔料の配合量を30重量%、並びにポリ塩化ビニル樹脂の配合量を70重量%となるようにして、これらを溶剤としてのシクロヘキサンに溶解したインキ（粘度8000cps）を遮光層のパターンのさらに別の間隙に印刷し、 $80^\circ\text{C}$ でベークして、蛍光体層Bのパターンを得た。蛍光体層Bの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であった。以上より研磨しなかったこと以外は実施例1と同一の条件で、色変換部材を作製し（図10）、表面粗さ計（DEKTAK 3030）により、青色カラーフィルタおよび蛍光体層C、Bの膜厚はそれぞれ $20\mu\text{m}$ 前後で揃えたので、表面凹凸は $1.8\mu\text{m}$ に平坦化されていた。以下、実施例1と同一の条件で酸化ケイ素膜および有機EL素子を作製して、有機EL多色発光装置を作製した。次に、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $52\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ でさらに色純度の高い青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Cから見える光の発光輝度は、 $115\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で実施例1より色純度の高い赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したところ、各色変換層から本来の色の発光が得られ、色ずれ（混色）は見られなかった。

【0113】[実施例6]支持基板として、 $100\text{mm}\times 100\text{mm}\times 1.1\text{mm}$ 厚のガラス基板（コーニング7059）上に、30重量%（対固形分）のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジスト（粘度10cps）をスピンドコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベーク後、さらに $200^\circ\text{C}$ でベークし、 $2\mu\text{m}$ 膜厚の黒色ベタ膜を成膜した。次に、黒色ベタ膜の反対側をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置（日本真空技術社製）の基板ホ

38

ルダーに固定した。蒸着源は、モリブデン製の抵抗加熱ポートに正孔注入材料としてMTDATA及びNPD、発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、陰極の第二金属としてAgをタンクステン製フィラメントに、陰極の電子注入性金属としてMgをモリブデン製ポートに装着した。その後、真空槽を $5\times 10^{-7}\text{torr}$ まで減圧後、 $600\mu\text{m}$ ライン、 $100\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを介して、まず陰極のパターンを成膜し、次いで電子注入層から正孔注入層まで成膜した。なお、陰極から正孔注入層を順次積層するときは、途中で真空を破らず一回の真空引きでおこなった。まず、陰極としてはMgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度 $1.3\sim 1.4\text{nm/s}$ 、Agは、蒸着速度 $0.1\text{nm/s}$ で膜厚を $200\text{nm}$ とした。次に、電子注入層としては、Alqを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm/s}$ 、膜厚 $20\text{nm}$ 、発光層としてはDPVBiを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm/s}$ 、DPAVBを蒸着速度 $0.05\text{nm/s}$ で同時蒸着して併せて膜厚 $40\text{nm}$ （ホスト材料に対するドーパントの重量比は $1.2\sim 1.6$ ）とし、正孔注入層としては、NPDを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm/s}$ 、膜厚 $20\text{nm}$ 、MTDATAを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm/s}$ 、膜厚 $400\text{nm}$ の条件で蒸着した。次に、この基板をスパッタリング装置に移動し、室温で $120\text{nm}$ 膜厚、 $20\Omega/\square$ の透明電極（陽極）としてITOを $250\mu\text{m}$ ライン、 $50\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを介して、成膜し、有機EL素子を作製した。なおここで、陰極と陽極が直交させ、それぞれの電極の端子がとれるようにマスクを配置した。次に、この基板上の陰極と陽極の交差範囲の周辺部に、ディスペンサーにて、エポキシ系光硬化型接着剤（スリーポンド社製3113）を $1\text{mm}$ 程度の幅で一部隙間を開けて塗布した。一方、実施例1と同一の条件で作製した、色変換部材の基板（表面凹凸 $0.2\mu\text{m}$ ）を有機EL素子と遮光層および色変換層を向い合わせるようにして、貼り合わせ、接着剤塗布部分のみを紫外線照射し接着剤を硬化させた。次に、窒素雰囲気下、透光性媒体としてフッ化炭化水素（米国3M社製、商品名：FC70）を注射針にて先の硬化した接着剤の隙間から注入した。次に、接着剤の隙間にさらに前記接着剤を充填し前記と同様に紫外線硬化した。このようにして、有機EL多色発光装置を作製し（図3）、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $50\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.1$

6で青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $113\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $22\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.55$ 、 $y=0.29$ で赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したところ、各色変換層から本来の色の発光が得られ色ずれ（混色）は見られなかった。

【0114】[比較例1]（色変換層が遮光層より薄い場合）

実施例1において、研磨を行なわなかったこと以外は実施例1と同一の条件で色変換部材を作製した。表面粗さ計（DEKTAK 3030）で色変換部材の表面凹凸を測定すると、 $5.6\mu\text{m}$ であり、色変換層すなわち青色カラーフィルタ層、蛍光体層Aは $15\mu\text{m}$ 、蛍光体層Bの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であった。この色変換部材を用いて、実施例6と同一の条件で多色発光装置を作製した（図4（b）、図12）。ここで、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $45\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ で色純度の高い青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $103\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したが、青色カラーフィルタおよび蛍光体層Aの輝度は、実施例1に比べて若干低下した。これは、遮光層がそれぞれの層よりも $5\mu\text{m}$ ほど厚くなるため、有機EL素子の光の一部が遮光層に吸収されるので、色変換層が十分光を受光できなかつたためと考えられる。

【0115】[比較例2]（色変換層が遮光層より厚い場合）

実施例2において、透光性基板に溝を形成せず、蛍光体層Bを埋め込まなかつたこと以外は実施例2と同一の条件で色変換部材を形成した。表面粗さ計（DEKTAK 3030）で色変換部材の表面凹凸を測定すると、 $5.4\mu\text{m}$ であり、また、色変換層すなわち青色カラーフィルタ、蛍光体層Aの膜厚は $15\mu\text{m}$ 前後、Bの膜厚は $20\mu\text{m}$ 前後であった。この色変換部材を用いて実施例6と同一の条件で多色発光装置を作製した（図4（a）,

図13）。ここで、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。青色カラーフィルターから見える光の発光輝度は、 $50\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ で青色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $110\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.30$ 、 $y=0.59$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.60$ 、 $y=0.31$ で赤色の発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したが、蛍光体層Aの色度が、実施例2に比べると変化し（色ずれ）、色純度が悪くなつた。これは、蛍光体層Bが他の層よりも $5\mu\text{m}$ ほど厚くなるため、蛍光体層Bから漏れた光が蛍光体層Aに混ざり込んだ（混色した）ためと考えられる。

【0116】[比較例3]（遮光層を形成しない場合）

実施例1において、遮光層を形成しなかつたこと以外は、実施例1と同一の条件で色変換部材を作製した。以下、実施例1と同一の条件で酸化ケイ素膜および有機EL素子を作製して、有機EL多色発光装置を作製した。次に、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、遮光層および色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $55\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.20$ 、 $y=0.30$ で青緑色の発光が得られることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $95\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.30$ 、 $y=0.51$ で黄味がかった緑色（イエロイッシュグリーン）の発光が得られることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $20\text{ cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.50$ 、 $y=0.31$ でピンクの発光が得られることを確認した。以上のように、有機EL多色発光装置を作製したが、遮光層がないため、各色変換層からの光が隣接する色変換層に入り込み、色ずれ（混色）を起こして、色純度の悪い多色発光装置となつた。

【0117】[実施例7]（基板の表面凹凸と有機EL素子の発光欠陥の関係）

透光性基板として、 $100\text{ mm} \times 100\text{ mm} \times 1.1\text{ mm}$ 厚のガラス基板（コーニング7059）を4枚準備し、それぞれの基板上に30重量%（対固形分）のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジス

## 41

ト(富士ハントエレクトロニクス・テクノロジー社製CK2000)を各種回転数でスピンドルコートし、80°Cでベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、5.0 μmライン、25.0 μmギャップのストライプ状のパターンが得られるマスクを介して、300 mJ/cm<sup>2</sup>(365 nm)で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で2分間室温現像後、200°Cでベークして遮光層のパターンを形成した。遮光層の膜厚は、それぞれ0.2 μm、0.5 μm、1.0 μm、2.0 μmであり、それぞれの膜厚が基板の表面凹凸に相当する。さらに、透光性媒体として、酸化ケイ素(SiO<sub>2</sub>)を基板温度160°Cに加熱し、10<sup>-5</sup> torrの真空度にてスパッタリングした。膜厚は0.5 μmであった。なお、酸化ケイ素の成膜後も表面凹凸を測定すると、上記それぞれの基板の表面凹凸に変化はなかった。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL素子の作製を行なった。次に、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印\*

## 42

\*加し、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分を発光させ、表面凹凸の異なる基板上の有機EL素子の評価を行なった。結果は表2に示す。なお、比較の対照として、透光性基板上(表面凹凸<0.1 μm)に直接有機EL素子を作製したものも準備した。表2より、表面凹凸が2.0 μm以下の基板上への有機EL素子は、断線またはショートによる輝度低下およびクロストークが少ないことがわかった。

【0118】[比較例4] 遮光層の膜厚を3.0 μm、4.0 μm、5.0 μmとしたこと以外は、実施例7と同一の条件で有機EL素子を作成した。結果は表2に示す。表2より、表面凹凸が3.0 μm以上の基板への有機EL素子は、断線又はショートによる輝度低下およびクロストークがあることがわかった。

【0119】

【表2】

	基板の表面凹凸(μm)	輝度低下 <sup>1)</sup>	クロストーク <sup>1)</sup>
実 施 例 7	0.2	なし	なし
	0.5	なし	なし
	1.0	なし	少しあり
	2.0	少しあり	少しあり
比 較 例 4	3.0	あり	あり
	4.0	あり	あり
	5.0	あり	あり

1) 平滑な透光性基板(表面凹凸が0.1 μm未満)上有機EL素子を作製した場合を基準とする。

#### 【0120】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によって、色ずれ(混色)の発生を防止し、輝度を向上させ視認性に優れ、実用的な多色発光装置を提供することができる。また、歩留りよく製造できる構成の多色発光装置を提供することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の多色発光装置の一の実施形態を模式的に示す断面図である。

【図2】本発明の多色発光装置の一般的な構成を模式的に示す断面図である。

【図3】本発明の多色発光装置の一般的な構成を模式的に示す断面図であり、色変換部材と発光部材との間に透光性媒体を設けた場合を示す。

【図4】本発明の多色発光装置において、遮光層の厚さを基準とした場合の色変換層の厚さの影響を説明するための断面図である。

【図5】本発明において、色変換部材の各色変換層に各約50

※発光部材を密着させ、色変換部材の表面凹凸に発光部材を追随させた場合を模式的に示す断面図である。

【図6】本発明における、平坦化層の厚さの影響を説明するための断面図である。

【図7】本発明において、色変換部材を研磨する場合を模式的に示す断面図である。

【図8】本発明において、膜厚の薄い色変換層を透光性基板中または、透光性媒体中に埋め込んだ場合を模式的に示す断面図である。

【図9】本発明において、膜厚の薄い色変換層を透光性媒体で底上げした場合を模式的に示す断面図である。

【図10】本発明において、膜厚の薄い色変換層の中に透光性媒体を含ませた場合を模式的に示す断面図である。

【図11】従来技術を示す断面図で、有機EL素子の発光が受光できるように蛍光媒体を配置した場合を示す。

【図12】比較例を模式的に示す断面図である。

【図13】比較例を模式的に示す断面図である。

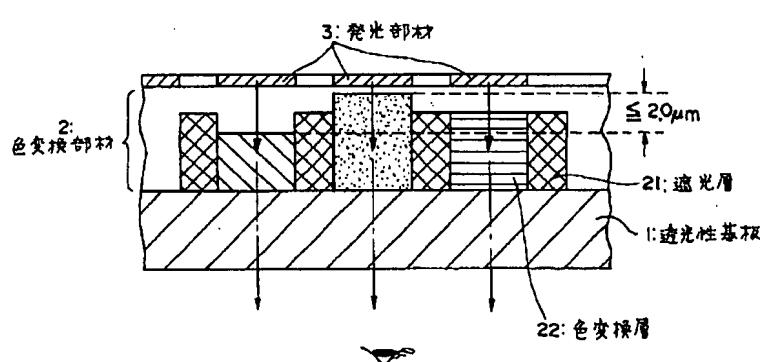
【符号の説明】

1 透光性基板

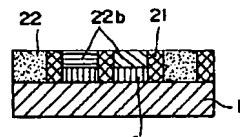
2 色変換部材  
 21 遮光層  
 22 色変換層  
 22a 膜厚の厚い色変換層  
 22b 膜厚の薄い色変换層  
 3 発光部材

31 有機EL素子  
 32 電極  
 33(透明)電極  
 34 有機物層  
 4 透光性媒体  
 5 平坦化層(透光性媒体)

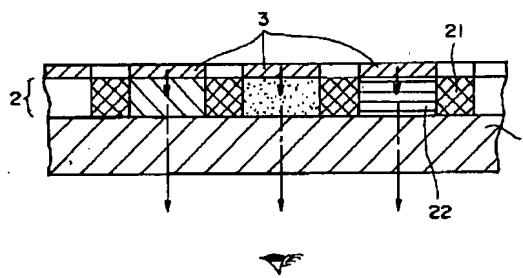
【図1】



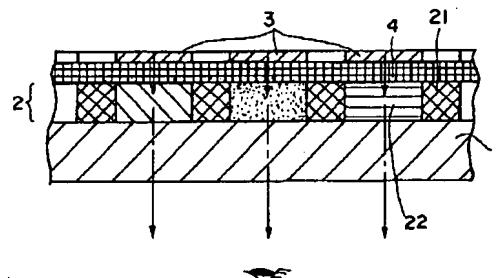
【図9】



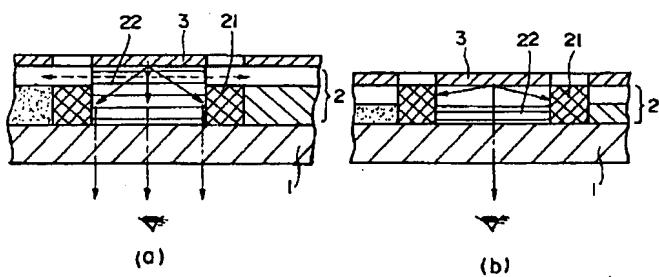
【図2】



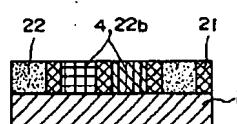
【図3】



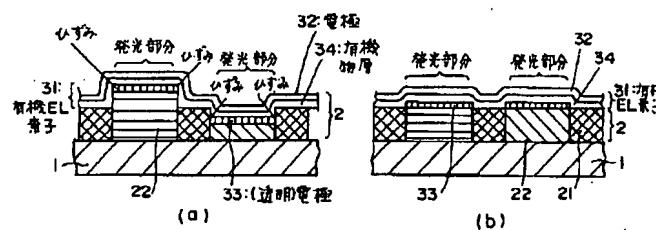
【図4】



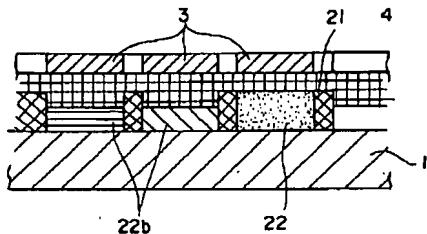
【図10】



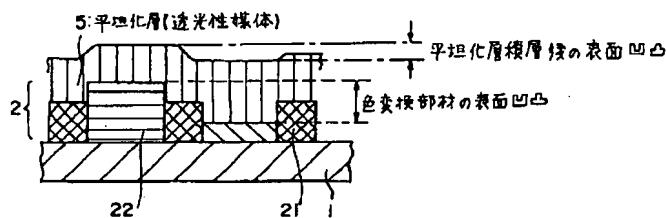
【図5】



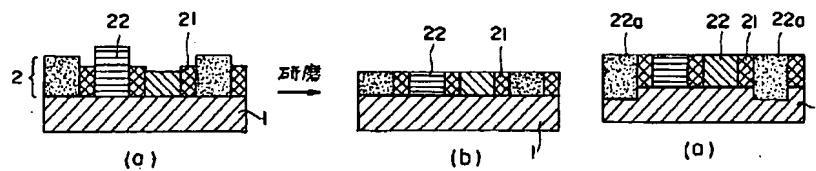
【図12】



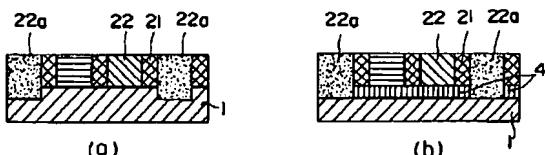
【図6】



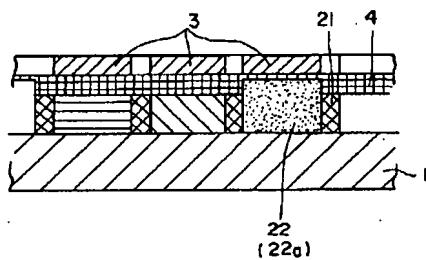
【図7】



【図8】



【図13】



【図11】

